

质子交换膜燃料电池系统故障机理分析及 诊断方法研究综述

马睿¹, 党翰斌¹, 张钰奇¹, 霍喆¹, 李玉忍¹, 高非²

(1. 西北工业大学自动化学院, 陕西省 西安市 710072;

2. 贝尔福-蒙贝利亚技术大学, 法国 贝尔福 90010)

A Review on Failure Mechanism Analysis and Diagnosis for Proton Exchange Membrane Fuel Cell Systems

MA Rui¹, DANG Hanbin¹, ZHANG Yuqi¹, HUO Zhe¹, LI Yuren¹, GAO Fei²

(1. School of Automation Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, Shaanxi Province, China;

2. Université de Technologie de Belfort-Montbéliard, Belfort 90010, France)

ABSTRACT: The excellent performance of proton exchange membrane fuel cells (PEMFCs) makes them suitable for applications including power generation, transportation, and aerospace. However, problems such as insufficient reliability and poor durability have severely restricted its industrialization process. Therefore, it is necessary to develop fault diagnosis methods to further improve fuel cell performance. This review paper first demonstrates the PEMFC system topology and its classical faults, and then summarizes the current research progress of PEMFC fault diagnosis methods including model-based, data-driven, experimental test based, and fusion method. Meanwhile, the current research status of PEMFC system online fault diagnosis is discussed. At last, the paper gives the potential developing tendency of the fault diagnosis in the future. Overall, the paper aims to contribute to the research and massive applications of the PEMFC.

KEY WORDS: proton exchange membrane fuel cell; fault diagnosis; failure mechanism; model

摘要: 质子交换膜燃料电池(proton exchange membrane fuel cells, PEMFC)以其高效无污染等特性在发电、交通运输以及航空航天等领域有广阔的应用前景,然而可靠性和耐久性不足等问题已成为技术瓶颈,亟需探究高效的系统故障诊断方法。该文在介绍质子交换膜燃料电池系统构成及典型故障产生机理的基础上,综述了基于模型方法、数据驱动方法、实验测试方法、融合方法等质子交换膜燃料电池系统的故障诊断方法研究进展,对各种方法进行了分析对比,并对在线诊断技术进行总结分析,最后提出质子交换膜燃料电池系统故障诊断方法发展趋势及展望,以期为其后续研究及快速商

业化应用提供参考。

关键词: 质子交换膜燃料电池; 故障诊断; 故障机理; 模型

0 引言

随着近年来社会经济的快速发展,世界各国对于能源的需求已达到空前的规模,而化石能源短缺以及大量燃烧后所引发的环境问题已经严重危及人类的生存与发展,探寻绿色清洁的能源供给方式已然成为解决这些问题的关键。质子交换膜燃料电池(proton exchange membrane fuel cell, PEMFC)以其能量转换率高、环境友好、运行温度低以及启动速度快等优势而被关注,目前在固定式/便携式发电、交通运输以及航空航天等领域中都已展现出独特的优势^[1-2],然而现阶段的质子交换膜燃料电池仍然存在可靠性不足和耐久性差等问题,实际运行中一些难以避免的故障(如水淹、膜干等)是导致这些问题的主要原因^[3],如果未能及时排除将会降低电堆的使用性能,严重时甚至会诱发一些致命性故障,造成电堆内部不可逆的损伤甚至永久性损坏。由此可见,可靠有效的故障诊断技术对于保障燃料电池安全平稳运行至关重要,同时对于降低运维成本以及促进我国燃料电池产业化发展也具有重要意义。

21世纪以来,燃料电池系统故障诊断技术已有了长足的发展,诊断性能逐步得到提升,根据其是否通过建模来实现诊断可以将这些方法归纳为基于模型法、基于数据驱动法和基于实验测试法3类。

基金项目: 国家自然科学基金项目(52007155, 52377213)。

Project Supported by National Natural Science Foundation of China (52007155, 52377213).

基于模型法首先需要建立正常运行状态下的燃料电池模型,按照建模方法可分为解析模型、灰箱模型和黑箱模型,而后通过分析评估实际测试值与模型输出值间的残差实现对故障的判别,因此基于模型法也称残差法^[4]。基于数据驱动法则是通过分析、学习和挖掘系统历史数据中包含的故障信息来建立有效的诊断机制,相比于基于模型法,该类方法其诊断方式更加灵活,且更易实现在线化,因此基于数据驱动法也被认为是最有发展潜力的一类方法^[5]。而基于实验测试法主要依靠电化学阻抗谱(electrochemical impedance spectroscopy, EIS)技术、可视化技术、故障运行法以及外部磁场测量等实验途径实现,相比于其他类别的诊断方法,该类方法更有助于探究电堆内部故障的产生机理,但同时对于实验设备的要求也普遍较高。

目前,燃料电池系统故障诊断技术已经在汽车、机车^[6-8]等多个领域得到了实际应用。但由于燃料电池在生产加工装配过程中存在的精度误差导致单体性能差异,一定程度上会引起电堆在自身空间上的非均匀性。同时,电堆运行过程当中不可避免地存在性能劣化现象,现有故障诊断方法在不同时间尺度、不同运行工况下的有效性有待进一步完善与提升。近年来,以人工智能为基础的故障诊断技术飞速发展,本文在已有研究综述工作的基础上^[9-13],从电堆及辅机运行异常或故障的角度出发,系统性地对系统常见故障的产生原因、危害以及故障恢复等方面进行探讨和总结;从基于模型法、基于数据驱动法以及实验测试法3个方面,全面深入地分析当下 PEMFC 系统故障诊断方法的原理、性能、优缺点以及应用场景,并对各类诊断方法进行详细的对比和归纳;同时,进一步综述了 PEMFC 系统在线故障诊断技术研究现状;客观而全面的梳理了国内外已有的燃料电池故障诊断领域的研究文献,从时间分布和研究方向分布两个角度对 PEMFC 系统故障诊断方法未来的发展方向进行分析,并围绕 PEMFC 系统健康管理领域下一步的研究方向进行了未来技术的展望。本文旨在使读者能够全面地了解当前 PEMFC 系统故障诊断技术的发展概况,以期后续更为深入的研究提供参考。

1 PEMFC 系统及典型故障机理分析

1.1 燃料电池系统结构

根据电堆结构原理的不同,可将 PEMFC 系统

分为阴极闭合式与阴极开放式两种。如图 1 所示,两种结构均包含燃料电池电堆本体、气体供应/功率调节子系统以及控制模块,主要区别在于阴极闭合式是将阴极气体通过空压机泵入电堆,且系统包含独立的水热管理子系统,而阴极开放式则是通过风扇将阴极气体鼓入电堆内部,电堆阴极通道充分暴露在外部周围环境中,风扇在供氧的同时兼备散热和排水功能。由于阴极开放式电堆具备自加湿能力,其供氢子系统中一般无需配备加湿器。

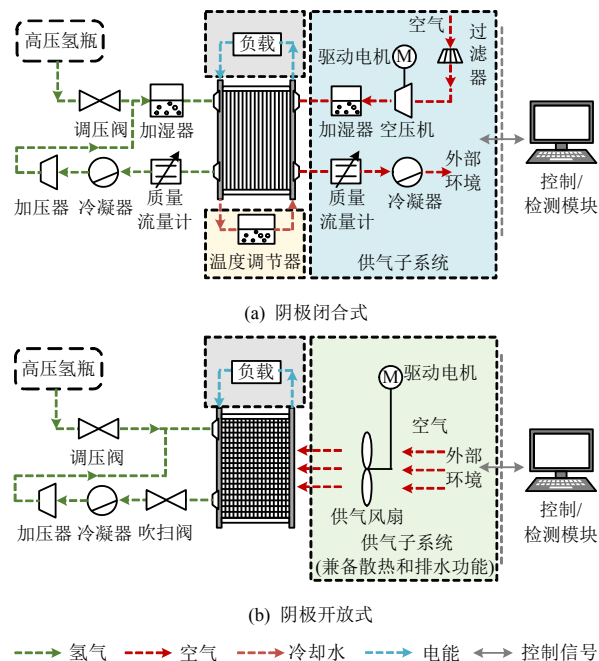


图 1 PEMFC 系统结构

Fig. 1 Topology of PEMFC system

在阴极闭合式燃料电池结构中,电堆内部与外部环境完全隔离,仅通过外围子系统与外界进行交互,并且所配备的供气系统具备宽范围调节能力,因此更适用于外部环境恶劣以及高空/高原等氧气稀薄^[14]的应用场景中,但缺点在于系统结构过于复杂,不利于准确实现故障诊断;而阴极开放式燃料电池结构更加简单,可靠性相对更高,同时也便于从外部植入故障诊断所需的传感器如热电偶等,适用于功率等级较低的应用场景中^[15],但由于电堆阴极侧直接裸露在外,当环境中杂质过多或受到外力冲击时,电堆本体的安全性将难以得到保障。综上所述,2种结构的 PEMFC 系统从电堆本体结构到系统的构成都存在较大差异,因此各类故障的产生机理也存在较大差别。

1.2 典型故障机理分析

质子交换膜燃料电池系统是一种包含多设备、多子系统的复杂系统,且电堆内部电化学反应涉及

多物理场耦合，因此表现为故障种类繁多、故障机理复杂以及故障难以定位等特征，不同设备、不同程度的故障对于电堆本体的影响各异，这对故障原因的查明以及故障机理的探究都带来不小的挑战。根据故障发生部位的不同，相关研究将 PEMFC 系统故障类别划分为电堆故障和辅机故障^[9]，本文通过构建故障树模型对各类故障进行汇总与梳理(如图 2 所示)，并从辅机故障的角度分析，讨论电堆水淹、膜干及反应物饥饿等典型故障。

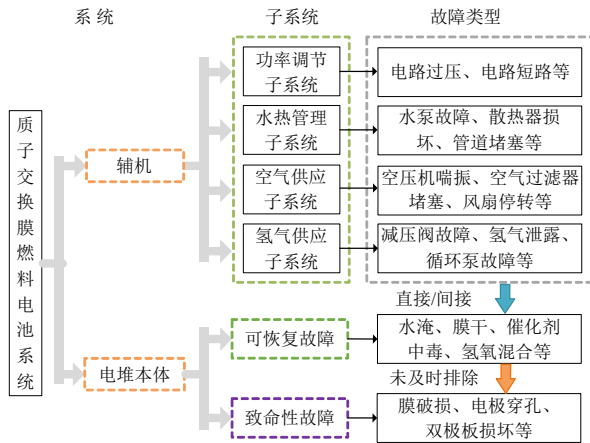


图 2 PEMFC 故障树模型

Fig. 2 Fault trees of PEMFC system

1.2.1 空气供应子系统故障

系统配备空气供应子系统，目的在于为燃料电池反应提供参数适宜的空气，同时兼备吹扫阴极流道内多余水分及杂质的作用。对于阴极闭合式系统，过滤器堵塞、空压机压力过低甚至空气管道漏气都会导致电堆氧饥饿，相应地，阴极开放式系统风扇转速过低甚至停转同样会导致该故障出现。氧饥饿作为一种常见的燃料电池故障类型，不仅会降低电堆工作电压，同时也会严重缩短其剩余使用寿命。此外，空压机喘振也是供气子系统工作中常见的故障类型之一。

1) 氧饥饿：通常在恶劣的运行条件下，例如零度以下启动、负载的快速变化、发生水淹故障时，供应的氧气不足以维持电堆电流，可能会导致燃料电池氧饥饿现象。当发生氧气饥饿时，可能的反应式异常为 $2H^+ + 2e^- \rightarrow H_2$ 。大量燃料电池饥饿实验证实，催化剂层的碳载体参与反应生成 CO_2 ，会减缓电堆的反应速率，降低电堆工作电压，文献[16]通过实验观察发现，在氧饥饿的情况下燃料电池会出现碳骨架的腐蚀、电极反转和不均匀的电流分布等现象，同时在此情况下也会加快催化剂流失^[17]，对电堆会产生不可逆的损害，严重缩短其剩余使用寿命。

2) 空压机喘振：质子交换膜燃料电池低功率运行时，阴极所需的空气流量降低，空压机转速降低，导致空压机工作点进入喘振区，系统发生“喘振”现象，这一现象是由于离心式空压机低速运行时，排出压力大幅度脉动，气体忽进忽出，出现周期性吼声以及机器的强烈振动^[18]。喘振现象对燃料电池系统有很大危害，首先，喘振时由于气流强烈的脉动和周期性振荡，会使叶片强烈振动叶轮应力大大增加噪声加剧，并可能损坏轴承、密封，进而造成严重的恶性事故。其次，当喘振故障发生时，燃料电池阳极流道中的压力和流量会呈现周期性上下波动，阴极流道中的压力和流量不变，这会导致阴阳极之间压力差变大，造成的燃料电池阴阳极的压力不平衡，易引发膜穿孔事故，另外流量在周期性脉动过程中也会引发氧饥饿故障，因此将严重影响燃料电池系统性能，甚至引发安全事故。

1.2.2 氢气供应子系统故障

氢气供应子系统配备有储氢罐、调压阀、循环泵及供气管路等部件，容易出现由供氢回路堵塞或漏气所引发的燃料电池氢饥饿故障。氢饥饿作为燃料电池另一种常见故障类型，不仅会导致电堆输出性能迅速下降^[19]，还可能导致电堆内部发生爆炸，严重威胁使用人员的生命财产安全。

氢饥饿：在质子交换膜燃料电池运行过程中，在负载电流下不能获得足够的氢气供应时，会造成氢饥饿现象。当燃料电池正常工作时，阳极的化学反应为 $H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$ ，阴极的化学反应是 $O_2 + 4H^+ + 4e^- \rightarrow 2H_2O$ 。在氢气饥饿现象出现时，可能会出现异常反应是 $2H_2O \rightarrow O_2 + 4H^+ + 4e^-$ 和 $C + 2H_2O \rightarrow CO_2 + 4H^+ + 4e^-$ 会加速碳骨架的腐蚀，导致催化层的碳载体降解，缺少支撑的铂颗粒也会因此脱落而发生团聚，进而导致电堆活化面积减少。文献[20]中提到，当燃料电池加载并且没有向阳极供应足够的反应物时，质子交换膜燃料电池电压逐渐降为零后成为负数，会引起“反极”现象。这会对 PEMFC 的电催化剂造成严重、永久性的损害。若质子交换膜燃料电池出现“反极”时仍然继续运行，则在阳极单电池可能会析出氧气，经电池气体管路进入相邻的单电池，将大幅降低质子交换膜燃料电池电压。氢氧混合可能使氢气和氧气在阴极催化剂上直接反应燃烧，造成燃料电池内部发生爆炸^[21]，降低质子交换膜燃料电池的开路电压，加速膜电极退化并降低质子交换膜燃料电池的剩余使用寿命，对电堆产

生不可逆的影响。同时,对于阴极开放式系统,由吹扫阀故障引起的吹扫异常会阻碍电堆阳极多余水分及氮气的排放,积累到一定程度时也会导致电堆阳极出现氢饥饿故障^[21],因此如何精确控制吹扫周期值得深入研究。

1.2.3 水热管理子系统故障

水在燃料电池运行过程中扮演着重要角色,一方面质子在传输过程中需结合水分子形成水合氢离子(H_3O^+)加速其传输速率,另一方面水对电堆的散热具有辅助作用,并由此降低电堆的寄生功耗,因此合理的水热管理对于电堆正常运行至关重要。对于阴极闭合式系统,其水热管理主要靠冷却循环系统以及供气子系统内的加湿器/散热器实现,而阴极开放式系统的水热管理则主要靠电堆阴极供气风扇以及吹扫阀,当这些设备出现故障或配合不当时会引发电堆水淹或膜干。另外在燃料电池运行过程中,会因为生成的CO而导致电堆输出性能将出现明显下降。

1) 水淹和膜干:在质子交换膜燃料电池的运行过程中,质子传导率与交换膜的含水量密切相关,因此充分湿润的质子交换膜才能使得燃料电池有良好的输出性能,但是当电池内部的含水量过高或不足分别会造成燃料电池的水淹和膜干故障^[9],进而影响电堆的性能以及寿命。燃料电池的水淹/膜干故障主要受电流、温度、气体压力、湿度及过量系数等因素影响。操作参数设置不当导致热管理和水管理出现失衡时,会出现液态水积聚在电堆流道及气体扩散层内无法排出或者质子交换膜水分太少而影响质子的传导,由此质子交换膜燃料电池进入水淹/膜干状态,处于该状态下的燃料电池可以通过调节操作条件来缓解以及消除此类故障。

①膜干故障:质子交换膜燃料电池在大电流密度下,随着输出电流的增大导致电堆内部电迁移增加,反应生成的水较多,如果电堆排水效果不好会导致阴极侧容易水量积聚导致水淹^[10]。质子交换膜燃料电池电堆温度会影响水蒸气析出的液态水量。当电堆电流较小而电堆温度较高时,会出现膜脱水,甚至膜干现象。当燃料电池发生膜干故障时,文献[22]中,通过燃料电池的严重脱水实验模拟膜干故障,观察到在发生膜干故障时,质子交换膜燃料电池传导质子的能力会大幅下降,且膜的电阻也会随之增大,严重时会导致局部过热而烧坏质子交换膜。如果长期处在膜干状态运行,干燥区域不断

的扩大,最终将导致整个质子交换膜发生干化破裂造成不可逆的损害。

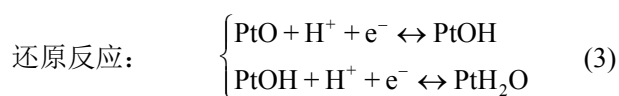
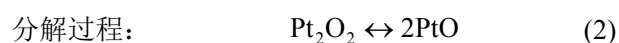
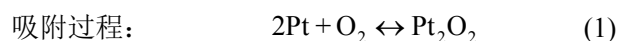
②水淹故障:燃料气体进堆时需要保持一定的压力以维持其的流动性,两侧压力差会加快水的压力迁移,推动水在膜中的传递,但电堆内部压力过大可能引起反应气流分布不均匀,从而导致流道内阻力变化,会造成气体扩散电极的腐蚀以及排水不流通引发水淹现象。阴/阳极过量系数决定气体在流道内的流速以及流量的大小,空气侧气体流量比氢气侧大,将内部液态水带出电堆的能力较强,因此一般水淹发生在氢气侧,当氢气侧液态水逐渐积聚至堵塞流道就会发生水淹现象。文献[23]利用改变阴、阳极入口气体的相对湿度来改变电堆内部的水含量,在模拟增加入口气体相对湿度时,结果表明当相对湿度过大时,电堆进入水淹状态,导致电堆性能下降。当燃料电池发生水淹故障时,随着液态水的不断积聚,导致燃料气体穿过扩散层到达催化层的传质阻力增大,最终会覆盖在气体扩散层和催化层表面,降低催化层活性,加快材料的腐蚀和催化剂的流失,甚至出现液态水堵塞住气体流道,导致气体流通不畅,严重影响对电池性能和寿命。

③解决措施:燃料电池水热管理不当会导致电堆出现水淹/膜干现象,常见的水淹/膜干缓解措施主要有优化操作条件、更新材料技术和改变流道设计结构等。优化操作条件主要采用脉冲排气结合改变操作条件的方法,水淹状态的情况下,短时间的脉冲排气,或是通过设置电堆的阳极压力降和欧姆阻抗的阈值,当压力降达到阈值时使用脉冲排气的手段用来缓解水淹,当欧姆阻抗大于阈值时增加空气进气湿度来缓解膜干,但是脉冲排气只能短时缓解水淹现象,排气结束后电堆很快又会进入水淹状态,不能从根本上解决水淹故障,所以只能作为严重水淹情况下的辅助策略,控制水管理和热管理才能从源头上解决膜干水淹故障。更新材料技术是通过改变燃料电池内的一些材料的材质从而防止水淹和膜干故障的发生,例如添加疏水的混合黏剂共聚物在阴极催化层,增加其疏水性加快阴极测液态水排出,可以有效防止水淹并提高氧气的传质。提出修改流道的形状设计,也可以让电堆性能达到最佳,使电堆在高湿度的情况下保持有较好的性能,加强水从阴极到阳极的反渗作用,有助于膜的水合作用并提高电导率。

2) CO 中毒：在燃料电池运行过程中，电堆内部的水易与碳基物质产生化学反应形成一氧化碳 (CO)，由于质子交换膜燃料电池采用贵金属 Pt 为电催化剂，而 CO 比氢气更易吸附在电催化剂 Pt 的表面，使电催化剂 Pt 中毒失活，因此过量的 CO 会导致氢气氧化过程受阻，从而引发电堆中毒，在电堆运行过程中不易恢复，并且会导致电堆输出性能将出现明显下降。目前尽管可以采用阳极注氧、重整气预处理等方法处理 CO 中毒问题，但从根本上解决，还需采用抗 CO 中毒的电催化剂。

1.2.4 功率调节子系统故障

功率调节子系统作为连接电堆与载荷间的纽带，能够通过控制电力电子器件对电堆输出电能进行调节和变换以满足载荷需求，易出现由电力电子器件损坏、控制算法失效等原因导致的短路或过压故障。当短路故障发生时，过大的电堆电流密度将造成电堆短时水淹及温度的骤升，期间水的饱和分压也会进一步提高，大量液态水的蒸发使得电堆故障由水淹快速转变为膜干，系统性能急剧下降，且在运行中不易恢复，持续发展将摧毁整个电堆。电堆过压(一般指单电池电压 $>0.8V$)则会加速碳腐蚀及催化剂氧化的速率，而当电压持续增加至一定范围时(一般指单电池电压 $>1.6V$)将导致铂颗粒脱落，致使催化剂大量流失，严重缩短电堆的使用寿命^[24]。铂在参与电堆氢氧电化学反应中的催化机理如式(1)–(4)所示。



氧化铂作为中间产物在反应中不可避免，但当电堆过压时会加速铂的氧化速率，大量氧化铂附着在催化剂表面将降低反应的活化面积，阻碍燃料电池电化学反应进程。针对该问题现阶段普遍采取的解决方案是通过周期性短路来打破氢氧电化学反应的动态平衡，使氧化铂重新还原至铂单质，从而达到降低氧化铂浓度、提升电堆动态性能的目的^[25]。另外对于阴极开放式电堆，周期性短路还可以在短时间内充分消耗电极周围的氢气与氧气，产生的水分能够达到自增湿的效果，目前新加坡的 Horizen、加拿大的 Ballard 等公司生产的阴极开放

式质子交换膜燃料电池系统均采用的是这种自增湿方法。

根据已有研究，最常见的 PEMFC 故障发生比例如图 3 所示，水淹和膜干分别占 33%和 19%，其次是老化、氢泄漏、一氧化碳中毒及其他故障。

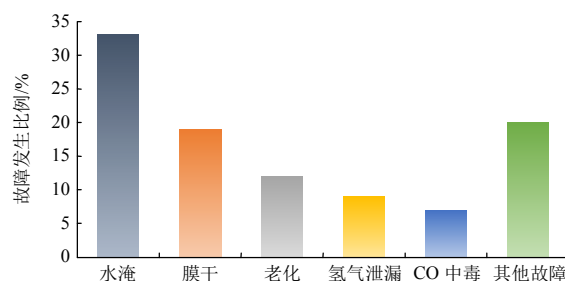


图 3 PEMFC 故障发生比例

Fig. 3 PEMFC fault rates

基于上述分析，表 1 总结了燃料电池系统的主要故障，并且根据故障的发生比例、故障对系统性能的影响、故障对系统造成的损坏程度以及可恢复性对每种故障的严重程度做出分级。

2 PEMFC 系统故障诊断方法

故障诊断包括故障的检测、识别和定位^[25]，其中故障检测是指通过在线测量数据与期望值进行比较以判断系统设备或组件是否存在故障；而故障识别的作用在于准确快速地识别出故障类型，既要具备区分非故障扰动与故障的能力，降低故障的虚警率，同时又要具有准确识别各种潜存故障类型的能力，为故障容错控制提供决策依据；当完成故障识别后则需要进一步对故障进行定位，以确定故障发生部位，便于后续的维修，有效的故障诊断方法可以显著提升电池性能并降低运维成本。根据诊断原理的不同，现有 PEMFC 故障诊断方法可分为基于模型的方法、基于数据驱动的方法、基于实验测试的方法与融合方法 4 大类，每类方法都包含多种子方法。

2.1 基于模型的方法

模型法的诊断原理是通过决策评估燃料电池系统实际测量值与模型估计值间的残差来对故障类型进行判定的^[5]，诊断流程如图 4 所示。可以发现，决定该方法诊断性能的关键因素主要有两个：1) 建模，模型精度决定了残差的质量；2) 决策，良好的决策规则可以提升故障识别的成功率。根据相关研究文献，目前常用的模型类别主要包括解析模型、灰箱模型以及黑箱模型，下文将按照这 3 种模型类别，对基于模型法在 PEMFC 系统故障诊断

表1 燃料电池主要故障总结

Table 1 Summary of main faults of fuel cell

故障位置	故障类型	原因	影响	可恢复性	严重程度
电堆	水淹	高电流密度、低电池温度、高入口湿度	性能下降、加速系统老化	及时处理, 可逆	中低
	膜干	与导致水淹故障的条件刚好相反	性能下降、膜的性能损失, 形成针孔	若形成针孔, 则不可逆转	中高
	FC 中毒	入口氢气纯度低	性能下降、并且造成饥饿	取决于暴露时间、进气成分	中高
氢气供应系统	氢气饥饿(局部)	氢气分布不均匀	阴极电极损坏、电堆性能下降、可能会出现电极反转	及时处理, 可逆	中等
	氢气饥饿(全局)	氢气供应被完全切断	性能下降、碳腐蚀、电极反转可能引发爆炸	电机反转会对燃料电池造成不可逆的损害	高
	氢气泄漏	器件故障、密封故障	性能下降、流速降低	取决于泄漏时间、泄露位置	中低
	管道堵塞	器件故障、水管理问题	性能下降	及时处理, 可逆	中等
氧气供应系统	氧气饥饿	零度以下启动、负载快速变化、发生水淹时	电堆电压可能会反转、性能下降、碳骨架腐蚀、催化剂流失	若不及时处理、可能会对燃料电池造成不可逆的损害	中高
	空压机喘振	低功率运行时, 会导致空压机进入喘振区	性能下降、阴阳极反应物不平衡	及时处理, 可逆	中等
电气系统故障	短路	器件损坏、算法失效	电堆短时水淹和温度骤升、随后液态水蒸发, 水淹快速转为膜干	若不及时处理、可能会对燃料电池造成不可逆的损害	高
	控制器故障	器件损坏、算法失效	运行可能性和耐久性下降	可逆性取决于故障控制器的角色与损坏程度	中高
冷却系统	冷却系统故障	器件损坏	水淹	及时处理, 可逆	中低

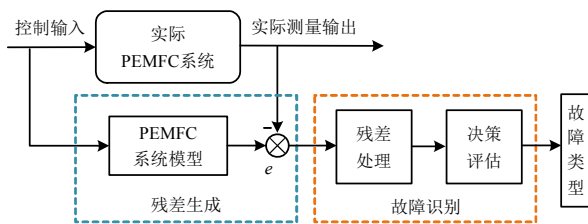


图4 基于模型法的 PEMFC 系统故障诊断流程

Fig. 4 Model based PEMFC fault diagnosis process

中的应用展开详细的综述。

2.1.1 解析模型

作为一种数学模型, 解析模型是在深刻理解燃料电池内部反应机理的基础上建立起来的, 能够通过一些基本物理化学方程如菲克定律、能斯特方程等较为准确地表述燃料电池内部运行状态, 目前已广泛应用于燃料电池系统测试^[26]、实时仿真^[27]以及故障诊断中^[28-29]。得益于解析模型所具备的优势, 基于解析模型的故障诊断方法不仅具有诊断精度高、可解释性强且无需额外设备等优点, 同时也有助于对电堆内部故障机理的探究。文献[28]通过建立 PEMFC 分段解析模型对其水管理故障的形成机理进行研究, 并指出阴阳极气体进出口压力降及电堆输出电压等参数可以有效反映 PEMFC 是否存在水管理故障。文献[29]通过建立 PEMFC 系统解析模型, 探究了辅机故障与电堆故障之间的联系, 并通过模型与实际测量值产生的残差有效诊断出了系统阀门堵塞、阴极气体泄漏、膜干等 9 种故障,

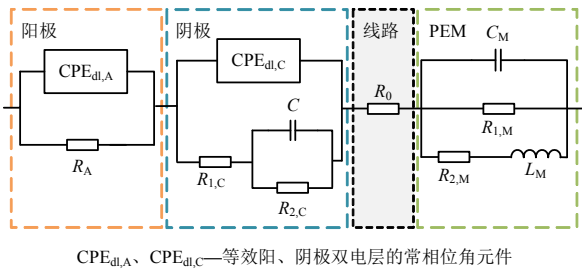
然而值得注意的是, 解析模型在具备高精度的同时也带来了模型结构复杂、难以实现在线化应用等弊端, 导致其发展受到一定限制。

2.1.2 灰箱模型

为解决解析模型存在的弊端, 研究人员通过建立经验公式或映射关系来替代解析模型中较为复杂的数学关系式以达到简化模型的目的, 由此构建出来的模型统称为灰箱模型, 因此灰箱模型的计算成本更低, 诊断效率更高。根据相关文献, 目前质子交换膜燃料电池系统故障诊断中常见的灰箱模型包括参数辨识模型^[30-35]、观测器模型^[36-37]以及等价空间模型^[38-39]:

1) 参数辨识模型: 模型参数是反映燃料电池系统状态行为重要的参照量, 通过检测模型参数是否超出预先设定的阈值范围即可识别出相应的故障类型。现有的 PEMFC 参数辨识模型主要包括等效电路模型^[30-31]和等效阻抗模型^[32-34], 文献[30]建立了质子交换膜燃料电池系统等效电路模型, 通过辨识特定电阻电容等电气量的变化来识别电堆水淹、膜干及膜老化等故障, 文献[32]通过建立 PEMFC 等效阻抗模型(如图 5 所示)研究了该模型各部分与气体饥饿故障间的映射关系, 通过辨识阻抗模型中阴极部分电气量的变化即可诊断电堆是否存在气体饥饿故障^[34]。弛豫时间分布(distribution of relaxation time, DRT)分析法可有效识别燃料电池内

部多个极化过程，常作为支撑 PEMFC 等效阻抗模型开发的辅助工具^[35]。



CPE_{dl,A}、CPE_{dl,C}—等效阳、阴极双电层的常相位角元件

图 5 PEMFC 阻抗过程模型^[32]

Fig. 5 Impedance process model of PEMFC

2) 观测器模型：PEMFC 系统的观测器模型需整合在系统内部并与系统同步运行，通过分析观测器输出值与系统实际输出值产生的残差来诊断故障^[11]，具有构建方式灵活、鲁棒性强等特点。文献[36]提出一种基于改进型 Super-Twisting 滑模算法对 PEMFC 空气供应子系统的健康状态进行监测，该方法可以有效诊断出子系统气体泄漏故障，并在动态变载条件下仍可以保证诊断的有效性。文献[37]在已建立的 PEMFC 模型基础上提出了基于未知输入观测器(unknown input observer, UIO)的故障诊断方法，利用李雅普诺夫稳定性判据验证了该观测器的强鲁棒性，仿真结果表明该方法可以准确诊断出系统空压机出口流量异常及歧管出口执行机构异常等故障，并且能估计故障所发生的时间，有助于后续系统的维护。

3) 等价空间模型：其诊断的基本思想是利用质子交换膜燃料电池系统输入输出实际测量值来验证模型等价性以诊断和分离故障，目前也已广泛应用于燃料电池系统故障诊断中。文献[38]利用线性规范变量分析(canonical variate analysis, CVA)方法构建出 PEMFC 状态空间模型，并分别结合逆模型与卡尔曼滤波对氧输入量进行估计，结果表明所提出的“CVA+逆模型”诊断方法可以有效识别这两类故障，且诊断效果优于卡尔曼滤波。文献[39]建立了燃料电池系统健康状态下的等价空间模型，其次对产生的残差进行识别和分类，结果显示该在线诊断方法可以有效识别短路、氧饱和、氧饥饿以及冷却停止等 4 种故障。

如上所述，当前基于灰箱模型的诊断方法已取得长足的发展，诊断性能得到了显著提升，但由于缺乏对质子交换膜燃料电池系统内部故障机理更深层次的理解，使其在模型精度及完整度方面仍

有待进一步突破和完善。

2.1.3 黑箱模型

黑箱模型是通过数据训练方式来构建燃料电池系统输入输出之间的非线性关系，不需要深刻理解电堆内部的反应机理，摆脱了物理参数在传统建模过程中的限制。目前 PEMFC 系统故障诊断中常用的黑箱模型包括神经网络模型、模糊逻辑模型和支持向量机模型：

1) 神经网络模型：神经网络能够通过自学习的方式来完成系统模型的构建，模型由输入层、隐藏层及输出层 3 部分组成，内部包含有大量彼此相互连接的神经元，通过反向传播方式对内部参数进行迭代更新，以达到无限逼近真实质子交换膜燃料电池系统的目的，按照拓补结构特点可以分为单层前馈网络、多层前馈网络^[40-42]以及递归网络^[40]。文献[41]基于 Elman 神经网络构建了 PEMFC 正常状态下的模型，并通过对比模型电压/压力降输出值与实际测量值产生的残差对水管理故障进行诊断，诊断过程如图 6 所示。文献[42]基于双层前馈神经网络构建了 PEMFC 的阻抗模型，该模型输入量为时间和相对湿度，输出为膜电阻 R_m 、扩散电阻 R_d 、极化电阻 R_p 、双电层电荷量 Q 及扩散时间常数 τ_d ，借助式(5)求取燃料电池阻抗值并绘制阻抗频谱图，最后利用参数辨识实现对膜干及水淹故障的诊断。神经网络模型的开发周期相对较短，且具备出色的非线性拟合能力，但大量的数据采集测试会加速燃料电池的老化，导致诊断成本上升，另外神经网络模型的泛化能力相对较差，易出现过拟合问题，随着近年来人工智能领域的发展，以深度学习为代表的新一代神经网络具备深层非线性网络结构，神经网络模型现存的问题将会得到极大的改善，性能也会得到质的提升。

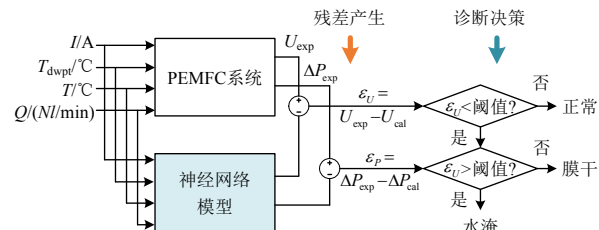


图 6 基于神经网络的故障诊断流程^[41]

Fig. 6 Fault diagnosis procedure based on neural network

2) 模糊逻辑模型：不同于经典布尔逻辑“非是即否”的逻辑规则，模糊逻辑是通过模仿人脑对模糊性对象的推理逻辑来构建燃料电池系统输入输出之间的关系，可以处理故障诊断中出现的不确定性、

歧义性及非线性问题。文献[43]构建了一种基于 Takagi-Sugeno(T-S)的 PEMFC 模糊逻辑模型,通过蚁群算法对模型参数进行寻优,进而结合电堆正常工作率(PN)的阈值及变化率对电极水淹及膜干

$$Z_T(j\omega) = R_m + \frac{1}{Z_{CPE} + \left(\frac{1}{R_p + Z_w}\right)} \quad (5)$$

故障进行在线诊断。为了提升燃料电池可靠性,文献[44]从氢安全角度建立以氢气泄漏为顶事件的故障树模型,文中通过模糊逻辑对故障发生概率模糊化并采用模糊数中值法对各底事件进行模糊重要度分析,找到薄弱环节并加以改进,以此提高燃料电池系统的可靠性。相比于神经网络,模糊逻辑仅需在运行经验或专家知识的基础上考虑所选择的特征、最佳聚类数以及目标函数,具有简单易实现的优点^[13],但缺点在于缺乏有效的学习机制,而神经网络在具备自学习能力的同时却缺少模糊逻辑所具备的逻辑推理能力。针对上述问题 J-S.Jang 等人将模糊逻辑与神经网络有机地结合,提出了自适应神经模糊推理系统(adaptive network-based fuzzy inference system, ANFIS),该系统在继承了两者优点的同时也克服了各自的缺点,使其具备自适应、自学习的能力,目前在 PEMFC 建模、老化预测等方面有很广泛的应用^[45-46],并且也会成为未来故障诊断发展中一种不可或缺的方法。

3) 支持向量机模型:支持向量机(support vector machine, SVM)是一种基于统计学理论发展起来的机器学习算法,主要用于解决分类和回归问题,而 PEMFC 系统建模是一种典型的回归问题,由 SVM 引申出的支持向量回归方法具有出色的非线性拟合能力,因此通过训练能够建立 PEMFC 系统输入输出之间的映射关系,完成模型的构建。文献[47]基于 SVM 构建了 PEMFC 系统黑箱模型,并选取了高斯径向基核函数(Gaussian radial basis kernel function, RBF)来提升模型非线性拟合能力,实验结果表明该模型相比神经网络模型的精度更高,拟合效果更好。文献[48]基于 SVM 构建了 PEMFC 功率密度模型,并在此基础上开展参数敏感性分析,探究了电堆运行温度、阴/阳极气体相对湿度等 6 个变量对输出功率密度的作用程度,实验结果表明气体压强和气体在扩散层中的传导率是影响质子交换膜燃料电池输出功率最主要的 2 个因素。如上所述,相比神经网络模型, SVM 模型的泛化能力

更强,并且不受输入向量维度约束,虽然在建模过程中存在核函数选取受限、算法收敛速度较慢等问题^[13],但所具备的优良性能仍使其在燃料电池系统建模及故障诊断中具有广阔的发展前景。

综合分析,目前限制基于模型法诊断性能提升的因素主要有两方面:一方面是模型精度,构建准确全面的 PEMFC 系统仿真模型,不仅要实现电堆本体及各子系统的精确建模,同时还要充分考虑各部分各组件之间不同程度的耦合关系,这就要求对系统内部运行机理有极为深刻的理解。尽管目前相关研究还无法达到这一水平,但随着数字孪生^[49]等新兴技术的发展以及对系统内部运行机理更为深入的探究,在可预见的未来质子交换膜燃料电池系统仿真模型的性能将会得到可观的提升;另一方面是诊断决策,该环节是决定诊断性能的关键一步,传统基于线性规则或阈值的决策方法较为粗糙,抗非故障扰动能力较差,难以满足现今精细化诊断的发展要求,随着新一代人工智能技术的发展与普及,有望协助实现一套精细完备的诊断决策规则。综上所述,基于模型法在当前仍有较大上升空间,值得做更进一步的研究。

2.2 基于数据驱动的方法

基于数据驱动法是通过分析、学习和挖掘系统历史数据中包含的故障信息来建立有效的诊断机制,其诊断的基本思路如图 7 所示,该方法可以有效避免系统建模及专家先验知识欠缺问题,缺点在于诊断性能高度依赖数据质量。基于数据驱动的方法诊断燃料电池的故障需要 3 个环节:数据的预处理、故障特征的提取以及故障的识别。

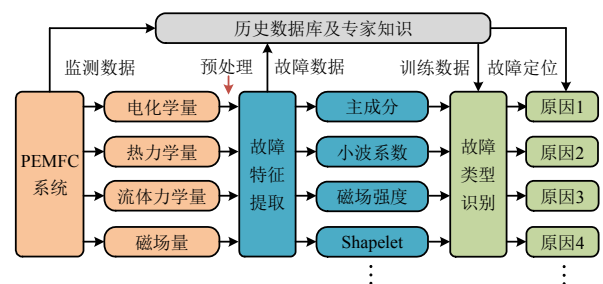


图 7 基于数据驱动法的诊断思路图

Fig. 7 Principle of data-driven diagnosis methods

2.2.1 数据预处理

由于在对原始数据的采集过程中往往会受到各种复杂因素的影响,直接采集得到的数据集一般较为杂乱,因此需要通过数据预处理环节来对原始数据集进行加工和优化。一般数据预处理过程包括

数据选取、数据清理及数据变换 3 个步骤^[50]。数据选取作为第一步，其目的是为了选取与诊断目标相关的数据，并对一些冗余数据进行剔除；数据清理是为了处理数据集中的缺失数据和噪声数据，对于缺失数据的处理一般是通过依靠现有数据信息来对缺失值进行推测，主要方法有回归、贝叶斯等；数据变换则是为了消除数据之间不同量纲的影响，使数据处于同一量级以便于分析和评价，主要方法有 min-max 标准化^[51]、Z-score 标准化等。

2.2.2 数据特征提取

故障特征提取是为了从原始数据集中提取出与目标故障相关的特征，剔除一些冗余信息以降低特征参数维度，达到简化诊断算法、缩短诊断时间的目的。该过程可以有效提升诊断效率，并且故障特征的质量很大程度上影响了诊断的效果，根据相关文献，目前采用的故障特征提取方法主要包括基于专家知识^[52-54]、基于信号处理^[55-60]以及基于特征降维^[54, 61-64]等。

2.2.3 故障识别

现有的故障识别方法主要是通过结合机器学习实现对故障特征的分类与识别，其基本原理是利用系统历史样本数据对分类器进行训练以使其具备识别相应故障的能力，按照分类器的训练方式可以分为监督学习和无监督学习两类。

1) 监督学习：是指通过带有标签的训练数据集来训练分类模型的一类机器学习问题，现阶段在处理质子交换膜燃料电池系统故障识别问题中主要有神经网络^[65-67]、支持向量机^[6, 68]、相关向量机^[63]及决策树^[51, 69-70]等方法：

①神经网络具有良好的学习能力，通过迭代训练能够建立故障特征与类别之间的映射关系。目前已广泛应用于质子交换膜燃料电池系统的故障诊断中。文献[65]利用 BP 神经网络集成的方法对冷却系统故障、氢氧混合以及供气子系统故障进行诊断，诊断结果显示良好。然而 BP 神经网络存在收敛速度慢且容易发生“过拟合”等问题^[66]，因此文献[66]中提出了基于超限学习机(extreme learning machine, ELM)的 PEMFC 系统故障识别方法，有效避免了传统 BP 神经网络在训练过程出现的数据重复训练情况，具有训练速度快、泛化能力强等优势；另外文献[67]提出基于长短期记忆(long short-term memory, LSTM)的 PEMFC 故障识别方法，并通过贝叶斯算法对模型参数进行寻优，诊断结果显

示该方法具有比传统 BP 神经网络更强的故障识别能力。

②支持向量机作为监督学习范畴内的一种线性分类器，其学习策略是使分类间隔最大化，借助“核方法”将数据映射至更高维的 Hilbert 空间中可以解决非线性分类问题，SVM 比较适合处理样本量较小的分类问题，并且可有效避免维数灾难、局部极小以及过拟合问题。文献[6]采用基于高斯径向基核函数 SVM 对 PEMFC 发动机氢泄露故障进行诊断，对于系统无泄露与轻微泄露故障的识别得到了显著提升；针对系统出现未知故障的情况，文献[68]提出基于球型多分类支持向量机(spherical-shaped multiple-class SVM, SSM-SVM)的方法予以解决，取得了良好的识别效果。而相关向量机与 SVM 不同的是该算法是在贝叶斯架构下进行训练的，它不受 Mercer 条件限制，并且可以估计出不同输出发生的概率，因此相比 SVM 更适用于 PEMFC 系统的在线故障诊断^[63]。

③决策树作为基本分类器之一，具有可读性高、分类速度快等优势，目前主要以集成的方式应用于质子交换膜燃料电池系统故障诊断中，通过集成可以提高分类准确度及稳定性，同时也能避免出现过拟合问题。文献[69]通过对比支持向量机、神经网络等 5 种经典机器学习算法，验证了随机森林算法出色的分类能力；文献[51]首次将随机森林算法应用于有轨电车用大功率 PEMFC 系统的在线故障诊断中，并取得良好的诊断效果。而基于 Boosting 方法集成的极端梯度提升算法(extreme gradient boosting, XGBoost)则是 PEMFC 系统故障诊断中一种新兴的故障识别方法，文献[70]采用 XGBoost 算法对大功率 PEMFC 系统进行了故障诊断研究，诊断结果表明该方法对于膜干、氢泄露故障的识别效果良好。

2) 无监督学习：是指从未被标记的样本数据集中学习分类模型的一类机器学习问题，其本质在于明晰数据中所包含的统计规律或潜在结构，现阶段以聚类为代表的无监督学习方法已广泛应用于 PEMFC 系统的故障诊断中。聚类的学习目标是将样本数据集划分为多个类，保证同一类的样本之间尽量相似，不同类样本之间差异尽量最大，与监督学习不同的是聚类没有训练过程，直接通过计算可以完成对样本的划分，现有聚类方法可分为硬聚类^[71-72]和软聚类^[73-74]两种，目前应用于 PEMFC 系

统故障诊断中的硬聚类方法主要有 K 均值 (K-Means) 聚类、竞争神经网络等, 软聚类方法主要有模糊 C 均值聚类以及高斯混合模型 (gaussian mixture model, GMM) 等:

①硬聚类中的样本数据其标签属性是完全确定的, 即某个样本只能完全属于某个聚类, 而其他聚类不存在从属关系。文献[71]通过将一维 PEMFC 输出电压信号转换为二维图像数据的形式来对电堆水管理故障的诊断, 通过费雪判别法(即 LDA)对图像中的故障特征进行提取, 并利用 K-means 聚类对所提取的故障进行分类, 从而识别故障类型。文献[72]提出基于竞争神经网络的 Hamming 神经网络方法来对 PEMFC 健康状态(state of health, SOH)进行诊断, 文中将 Δ_{R_d} 定义为活化损耗与浓差损耗之和, 并给出了电堆单体 SOH 的计算方法(见式(6)), 通过求取目标单体的 SOH 来对其健康状态进行诊断, 此方法避免了参数的反复测量, 从而节省了大量诊断时间, 使诊断效率得以提升。

$$\sum_{m=1}^{\infty} \left[R_4^2 - \frac{2R_5^2}{\tau_m} \left(\frac{R_4}{R_5} \right)^{\tau_m} \right] \frac{\mu_0 J_{im}}{\tau_m^2 - 4} \frac{f(m)}{\delta} \quad (6)$$

②模糊聚类(软聚类)是通过引入“隶属度”概念来对样本数据进行归类的。文献[73]提出模糊 C 均值为代表的软聚类方法能够将置信度较低的过渡区间作为故障的预警区加以利用, 从而能够尽早采取预防和保护措施。文献[74]通过对比实验研究了 K-means 聚类、GMM 以及 SVM 3 种方法对于 PEMFC 水管理故障的诊断性能, 并以误诊率(error diagnosis rate, EDR)作为评价诊断性能的参考标准, 文中首先通过 PCA 和费雪判别 (Fisher discrimination, FDA) 2 种降维方法对故障特征进行提取, 进而结合 3 种分类方法对故障进行识别, 诊断结果表明: 从测试集来看 KPCA+GMM 的识别率最高, 而从整体来看 FDA+SVM 的识别能力则更占优势, 这种优势主要的得益于 SVM 是有监督学习方法, 因此构建的判别机制更加有效, 而聚类的优势在于运算成本与数据量成正比, 当数据量较小时采用聚类方法识别速度更快。

如上所述, 基于数据驱动法表现出诊断方式灵活、诊断效率高等优势, 极具进一步开发潜力, 是目前 PEMFC 系统故障诊断领域中比较活跃的一类方法, 每年有大量相关文献成果产出, 诊断性能也在不断提升。根据当前最新研究成果, 基于数据驱动法已能够快速诊断出时间尺度较小甚至瞬时性

故障(如气体泄露、设备损坏等), 同时也具备对一些时间尺度较长故障(如水淹、老化等)的预诊断能力^[75-76], 另外在以深度学习为代表的新一代人工智能技术发展热潮下, 端到端的故障诊断模型可以避免传统数据驱动方法过多环节造成的误差累积, 从而进一步提升诊断性能, 目前已成功应用在高压引线接头^[77]、光伏^[78]以及电机^[79]等电力系统设备的故障诊断中, 显示出比传统方法更好的诊断性能, 未来应用在燃料电池系统中有望进一步提升诊断性能。

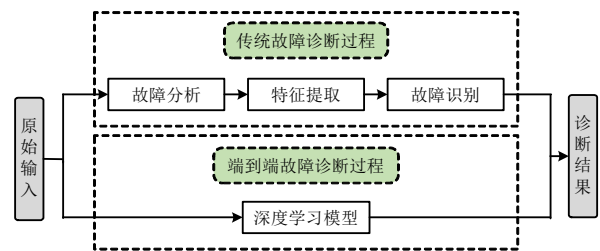


图 8 不同故障诊断过程对比

Fig. 8 Comparison between different fault diagnosis processes

2.3 基于实验测试的方法

基于实验测试的 PEMFC 故障诊断方法主要依靠电化学阻抗谱技术、可视化技术、故障运行法以及外部磁场测量等实验途径实现, 相比于其他类别的诊断方法, 该类方法更有助于探究电堆内部故障的产生机理, 但同时对于实验设备的要求也普遍较高。

2.3.1 基于 EIS 技术的诊断方法

EIS 技术作为一种功能强大的诊断工具, 对于 PEMFC 运行状态及其内部核心构件健康状态的诊断都十分有效^[80]。作为一种非侵入式的诊断方法, 通过对电堆施加不同频率的电流扰动(恒流模式)或电压扰动(恒压模式)以获取其阻抗信息, 而燃料电池通常工作在恒流模式下, 因此所施加的扰动一般为电流扰动。文献[81]通过 EIS 技术测取 PEMFC 的零相位欧姆电阻来对其膜干和水淹故障进行诊断, 其中高频处的零相位欧姆电阻可以指示质子交换膜内部水含量状况, 而低频处的零相位欧姆电阻则可以指示阴极是否发生了水淹故障。文献[82]则对比分析了电流密度、运行温度、相对湿度、空气化学计量以及背压对于阻抗谱的影响, 通过监视阻抗谱的变化来对 PEMFC 发生的相关故障进行诊断。随着近年来的相关研究的推进, 目前基于 EIS 技术的故障诊断方法无论从诊断精度亦或是诊断速度都已达到了新的高度^[83-84], 但仍存在着测试周

期长、测试条件高等技术壁垒，亟待未来研究中予以突破。

2.3.2 基于可视化技术的诊断方法

可视化技术主要是为了诊断 PEMFC 水热管理失效所引起的水淹及膜干故障，常用方法有部件透明化、中子成像、核磁共振成像以及 X 射线辐照成像等^[85]。文献[86]通过高速相机对装配有透明双极板的 PEMFC 进行观察以研究电堆内部水分布及动态变化；文献[87]通过中子成像技术研究了质子交换膜内部含水量与流道结构间的关系，研究结果表明流道内的水含量与入口数量/流道数量呈正相关，而与电流密度则呈负相关，如图 9 所示，流道内部水含量随着电流密度的增加而减少；文献[88]通过结合 X 射线辐照成像与电堆极化电压研究了高温高压对于电池性能的影响，实验结果表明高温会使水分蒸发过快，造成膜干故障，而微孔层水分含量则会大幅影响浓差极化电压，进而导致电堆输出电压降低。如上所述，可视化技术对电堆内部故障机理的研究十分有效，但因其设备昂贵、技术要求高等原因并不适用于在线故障诊断应用，且大多数可视化技术仅适合对故障进行定性分析，定量分析收效甚微。

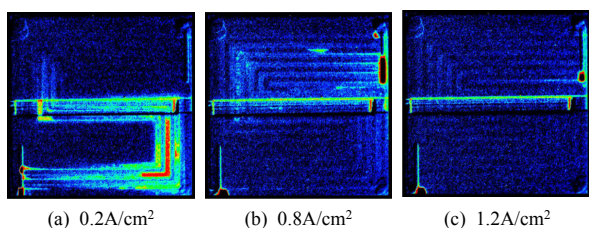


图 9 中子成像结果^[87]

Fig. 9 Results of neutron scan

2.3.3 故障运行法

故障运行法虽以牺牲电堆性能为代价，且实验过程中存在较大的危险性，但对于探究故障形成机理却是最直接、最有效的方法。文献[89]在不同程度水淹测试的基础上将 PEMFC 的水淹过程划分为无水期、湿润期、过渡期和水淹期，并给出了水淹报警界限，最后通过相应的实验对其合理性进行验证；文献[90]通过实验测试探究了 PEMFC 电堆阳极气体流通模式对其性能及耐久性的影响规律，并指出膜电极活化表面积和电堆输出电压是警示 PEMFC 燃料饥饿故障的重要指标。文献[91]通过检测电堆氢漏情况来诊断质子交换膜上“针孔”的形成情况及衰减程度，并在不同氮气流量条件下通过开路电压和阴极供氢量之间的关系验证所提出诊

断方法的准确性。

2.3.4 基于外部磁场测量法

该方法是基于对燃料电池运行状态与其内部电流密度联系的深度理解上建立起来的，通过检测电堆外部空间磁场的变化来对故障进行诊断和定位，具有无侵害性、易重复使用等优点。文献[92]等利用外部磁场测量法来辨识电堆电流密度在二维及三维空间中的变化，进而诊断出燃料电池是否存在水淹或膜干故障以及因老化所致的电堆部件材料性质的变化。文献[93]提出了基于三维有限元磁场模型以及外部磁路测量法结合的新型 PEMFC 故障诊断方法，实验结果表明该方法可以有效识别出 11 种不同的电流分布情形，不同电流分布对应电堆不同的运行状态，因此该方法能够有效诊断电堆多种不同程度的故障。综上，基于外部磁场测量的故障诊断方法不仅具备多重故障诊断及定位能力，同时具有无侵害性、易重复使用等优势，而缺点在于：一方面存在对车载电机或电路系统造成电磁干扰的隐患，可能会影响设备的正常运行；另一方面繁杂的测量设备会增加故障的概率，而传感器故障则会导致诊断虚警率上升甚至造成诊断失效，这两方面因素限制了该诊断方法的应用与发展。

基于实验测试法无论是在燃料电池系统故障诊断亦或是故障机理的探究都展现出一定优势，但由于实验设备便携性差、对环境要求较高、操作复杂等因素导致其目前仅限于实验室研究，难以产业化应用，但近年来，基于 EIS 技术的故障诊断方法已经能够集成在燃料电池系统中并且具备可观的诊断性能，有望在未来实现产业化应用。

2.4 融合方法

在质子交换膜燃料电池系统运行过程中产生的故障往往具有复杂性、不确定性以及多重故障并发等特征，单一的故障诊断方法通常难以满足诊断需求，因此可以借助多种诊断方法的差异性和互补性，通过融合方式扬长避短，从而获得比单一方法更优的诊断性能。目前质子交换膜燃料电池系统故障中断中应用的融合方法主要包括 3 种：基于模型与数据驱动的融合方法、基于多种数据驱动的融合方法以及基于实验测试与数据驱动的融合方法。文献[94]首先建立了 PEMFC 单体的“3D 故障敏感”模型，并利用 Newton-Raphson 法来计算该 3D 模型中每个节点的温度、电压及电流密度，然后通过快速傅里叶变换以及所构建的双层前馈神经网络算

法对故障进行分类和定位；文献[95]提出了基于模糊 C 均值聚类 and 模糊逻辑的双模糊诊断方法来在线监测 PEMFC 的水管理状况，其中模糊 C 均值聚类是为了形成数据集，而模糊逻辑则是为了进行诊断决策，通过实验表明该方法可以在线识别出燃料电池氧饱和、氧饥饿两种故障；文献[96]则是通过结合 EIS 技术与神经网络算法完成对 PEMFC 相关故障的诊断，应用 EIS 技术提取故障特征，而故障识别则依靠神经网络算法实现，诊断结果表明所

提方法在测试集上的整体精度可以达到 94.6%，而对于 CO 中毒等故障的识别率更是达到了 100%。

2.5 诊断方法小结

上文对 PEMFC 系统的不同诊断方法进行了批分类和总结，将各种方法分为 4 大类。在详细和全面的比较的基础上，系统地介绍和分析每个类别中的技术，表 2 详细总结了燃料电池系统的诊断方法的优点、缺点以及适用场景，希望可以为以后的深入研究提供参考。

表 2 诊断方法对比

Table 2 Comparison of PEMFC system diagnosis methods

诊断方法		优点	缺点	适用场景
模型	解析	精度高、可解释性强、无需额外设备	模型复杂难以在线应用	系统测试及诊断算法验证
	灰箱	模型有所简化、构建相对简单	内部机理描述不够清晰	在线诊断及参数敏感性分析
	黑箱	不受物理参数限制、拟合能力强	需要大量数据支撑	在线诊断及参数敏感性分析
数据驱动	神经网络	非线性近似能力强、模型架构简单	需大量数据且存在过拟合	离线/在线诊断
	支持向量机	适用于小样本数据、鲁棒性强	受 Mercer 条件限制、收敛慢	离线/在线诊断
	决策树	诊断准确且稳定性高	需要大量数据支撑	离线/在线诊断
	聚类	算法快速、简单	需要大量数据支撑	离线/在线诊断
实验测试	EIS	非侵入式、结果可靠	运行周期长、测试条件高	离线/在线诊断
	可视化技术	可细致研究故障机理	技术要求高、昂贵	故障机理探究
	故障运行法	直接、有效探究故障机理	危险，牺牲电堆性能	故障机理探究
	外部磁场法	无侵害性、易重复使用	对系统有电磁干扰	故障机理探究
融合	融合方法	兼备融合方法所有优势	相对较少	适用范围较广

2.6 PEMFC 故障在线诊断技术研究

随着产业化的升级，燃料电池对于故障诊断性能的要求也越来越高，能否做到故障在线诊断已经成为评判诊断方法有效性的重要指标之一，因此有必要对其发展现状进行综述。纵观 PEMFC 故障在线诊断技术的发展历程，可以将其概括为两个主要阶段：第一个阶段为初级阶段，即故障在线诊断方法的探索阶段，在此阶段一般认为电堆处于理想状态，所具备的功能也相对较为单一；第二个阶段是以初级阶段为基础发展起来的，在此阶段会考虑电堆的老化、空间非均匀性等实际运行过程中切实存在的问题，因此诊断策略更加复杂，实现也更加困难。本节将从以上两个阶段作为切入点来对 PEMFC 故障在线诊断技术的研究进行综述，所涉及的方法详见表 3。

在第一个阶段中，以数据驱动法为代表的故障在线诊断方法被广泛地挖掘与研究，诊断过程一般包括离线和在线两个部分，离线部分的主要任务是通过样本数据对预测模型进行训练以使其具备识别故障的能力，而在线部分则是利用已训练好的预测模型来对实时采集的 PEMFC 故障数据进行分

类，从而达到在线识别故障的目的，具体诊断流程如图 10 所示。

对于故障信息的获取主要是通过故障特征提取过程实现的，提取方法已在 2.2.1 节给出：包括基于专家知识、基于信号处理以及基于特征降维等。文献[39]利用 PEMFC 等价空间模型所产生的残差、文献[51-52]等利用电压电流等系统采集信号、文献[54]利用外部磁场测量信号、文献[80]利用 EIS 曲线与实轴交点值以及高频段峰值、文献[83]利用等效阻抗模型中各电气元件的参数值等不同方法对故障信息进行获取，不同的故障信息获取方式对应着不同的在线诊断策略，但在识别过程中通常需借助机器学习方法。以交通运输用 PEMFC 系统为例，其诊断周期一般要求小于一秒钟才能达到在线诊断要求^[68]，文献[51-52,62-66]等的诊断周期均已缩短至秒级以内，可以满足在线需求且都具有良好的泛化能力，然而要注意的是这些方法采用的都是静态分类器，无法实现自适应诊断，另外对于多重故障的诊断能力也十分有限，而基于 EIS 的在线诊断方法虽然具备诊断多重故障的潜力，但其存在诊断速度慢、诊断条件高等缺点，目前还无法完

表 3 诊断方法对比

Table 3 Comparison of PEMFC system diagnosis methods

文献	年份	方法	功能	诊断周期/s	正确率
[39]	2014	等价空间+DAGSVM	可有效识别短路、氧饱和、氧饥饿以及冷却停止等 4 种故障	—	100.0
[68]	2015	FDA+SSM-SVM	具备在线自适应诊断及识别未知故障类型的能力	0.006	>95
[97]	2017	回声状态神经网络	具备在电堆老化及动态过程下对于故障的诊断能力	—	92.43
[52]	2018	mRVM+FCM	可在线诊断氢气泄露、去离子水加湿泵及空气压力过低等 3 种故障类型	—	96.67
[62]	2019	PCA+OS-ELM	可在线诊断膜干和氢气泄露故障	0.296 9	99.67
[54]	2019	磁场测量+SSM-SVM	可有效识别氧饥饿、膜干、水淹等 7 种故障类型	—	98.26
[66]	2019	K-ELM+OS-ELM	可在线诊断 4 种不同程度的氧饱和和故障	0.201 1	98.70
[83]	2019	EIS+BT-SVM	大幅缩短 EIS 测试时间，且可以有效识别膜干、氧饥饿及水淹故障	>34	98.65
[60]	2019	Shapelet 变换+SSM-SVM	考虑了燃料电池动态过程及空间非均匀性，可有效诊断膜干等 4 种故障	0.01	96.13
[64]	2019	BiLSTM+t-SNE	可以诊断系统运行过程中所出现的膜干及水淹故障	24	96.88
[98]	2019	K-means+SVM	可实现燃料电池膜干及水淹故障的自适应诊断	—	99.11
[51]	2020	随机森林	可在线诊断氢气泄露、去离子泵低压等 6 种故障类型	0.006	>95
[63]	2020	OLDA+RVM	可实现电堆全寿命周期内水淹及膜干故障的自适应诊断	1.085	99.50

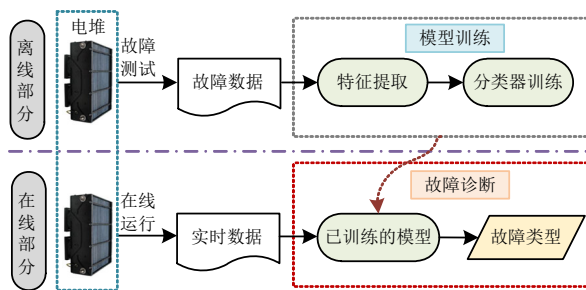


图 10 PEMFC 故障在线诊断过程

Fig. 10 Flowchart of online fault diagnosis process

全达到在线化要求^[83]。因此第一阶段的进展还远不能满足实际需求，这也促使了研究向第二阶段更迭。

在第二个阶段中，PEMFC 实际运行过程可能出现的老化、空间非均一性以及复杂动态过程等问题在设计诊断策略时会重点考虑。老化是燃料电池生命周期内不可避免的问题，它会使电堆特性逐渐发生变化，这种变化会导致传统静态分类器性能下降甚至失效，因此需要在线实时更新分类器的判别规则，文献[63,68]等在线自适应故障诊断方法均是在考虑燃料电池老化的基础上提出的，其中文献[68]中提出的基于 SSM-SVM 在线自适应故障诊断方法同时具备了识别未知故障类型的能力。燃料电池复杂动态过程同样是阻碍在线诊断实现的重要因素，该过程可能会致使传统基于信号时频分析的诊断方法失效，另外电堆的空间非均一性也会对影响故障的诊断以及定位。文献[81]提出的基于回声状态神经网络诊断方法同时考虑了电堆老化以及动态工况对于诊断的影响。文献[60]提出的基于 Shapelet 变换在线故障诊断方法则从时间序列的角度同时考虑了 PEMFC 空间非均匀性及动态工况的影响，

实验结果显示这些方法的诊断性能相比传统在线诊断方法更优，诊断能力更强。

综合来看，目前国内外关于 PEMFC 故障在线诊断技术的研究已取得了阶段性成果，并且得到了一定程度的实际应用，但受限于实际运行过程中电堆本体及周围环境存在多种未知因素的影响，现有方法仍面临鲁棒性不足、可移植性较差等问题，亟待进一步研究和突破。

3 PEMFC 系统故障诊断方法发展分析

本文相关引用文献时间范围覆盖 2005 年至 2022 年期间，主要采用 IEEE Xplore、Elsevier 以及中国知网等搜索引擎来对相关研究文献进行搜集与查阅，搜索使用的关键字包括：“PEMFC”，“Fuel cell”，“Fault diagnosis”，“Model”，“Non model”，“Data driven”，“质子交换膜燃料电池”，“故障诊断”，“基于模型”，“基于数据驱动”等，最终筛选 81 篇文献，如图 11 所示。

从时间分布的角度来看，PEMFC 系统故障诊断领域的研究成果总体呈现递增的态势，特别是 2014 年之后迎来了发展的黄金时期，世界范围内对质子交换膜燃料电池系统故障诊断研究给予的广泛关注，显示了故障诊断技术对于燃料电池性能提升及产业化发展的重要意义。从研究分布的角度来看，关于基于模型法的相关研究年限相对较早，但质子交换膜燃料电池系统运行机理复杂造成模型构建与解算困难，而关于基于数据驱动法的研究则在 2014 年后迎来了跨越式发展，这主要得益于人工智能/机器学习相关方法在诊断中的应用。综合分

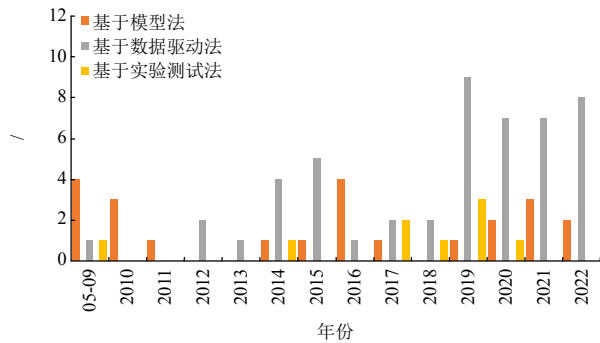


图 11 2005—2022 年期间发表的论文

Fig. 11 Published works during 2005-2022

析,对于基于模型法而言,其核心问题在于构建更加准确全面的 PEMFC 系统仿真模型以及合理的诊断逻辑规则,随着人工智能、数字孪生等技术的加入,基于模型法未来依然有着广阔的发展前景。对于数据驱动法而言,提升其诊断性能可以从两方面入手:一方面是提升传感器性能,开发出可靠性强、体积小、精度高、实时性好的传感器是提升基于数据驱动法性能的关键,另一方面是提升诊断算法的性能,使其能够在样本不均衡、数据噪音较大等情况下依然可以完成对故障全面实时的诊断。对于基于实验测试法,笔者认为以 EIS 技术、外部磁场测量为基础的诊断方法具备在线诊断的潜力,未来有望应用于交通运输等动态运行场景中,而基于可视化技术及故障运行法则由于设备便携性差、实验条件高、操作复杂等原因使其应用范围相对狭窄,未来应充分发展其优势对故障形成机理、故障危害评定等方面进行有突破的研究。融合大数据、人工智能等技术的新型在线故障诊断技术是未来 PEMFC 系统故障诊断的主要发展趋势。

4 下一步研究展望

当前在燃料电池系统故障诊断领域中,对于燃料电池系统的故障机理研究、故障诊断方法的探索已取得显著进展,但仍然存在难以量化系统内部故障机理过程、难以控制使系统运行在最优工作区间、难以实现全面准确可靠的故障诊断与评估策略以及难以准确及时缓解甚至消除故障所带来的影响等问题。

4.1 故障机理研究与故障模型的构建

目前关于 PEMFC 系统故障机理的研究主要停留在“定性”层面,即定性研究了各故障形成原因以及对电堆健康产生的影响,未来则需进一步确定系统输入参数与故障之间、故障与输出参数及电堆

寿命之间的量化关系,最终构建出完备的系统故障模型。构建 PEMFC 系统的故障模型,不仅有助于故障诊断策略的开发,同时对于降低研究成本、开展容错控制技术研究等都具有十分积极的意义,而难点在于 PEMFC 系统是一种包含电堆及外部多个子系统的非线性复杂系统,表现为系统内部各层次部件间不同强度的影响以及各参数间的非线性耦合关系,并且由于燃料电池结构的特殊性与运行状态的差异性使得电堆内部以及堆与堆之间存在明显的非均一性,对于 PEMFC 系统故障机理“量化”层面的探究造成很大困难,而以实验测试与统计学等为基础的融合方法将是克服以上困难的可行途径,有望通过寻找规律总结出较为完备的“量化”层面知识以支撑故障模型的构建,可进一步研究探索。

4.2 故障诊断与评估策略的研究

燃料电池的系统控制与故障诊断是密不可分的,在故障发生之前须通过合理的优化控制方法(通常以实时性和鲁棒性作为参考标准)将系统运行维持在最优化工作区间内,以保证系统的高效性和高耐久性,此时的运行状态方可标定为系统的“健康状态”。基于上文对故障的总结,从常见故障发生频次及形成机理出发,水热与供气管理是影响系统运行效率的主要因素,且二者之间具有一定耦合,因此在未来优化控制研究中应系统考虑这两方面因素,以效率优化为目标,同时结合电堆及系统设备结构设计与加工优化技术,来充分保障系统健康高效运行。

当系统工作点脱离或即将脱离最优化工作区间表明故障已经或将要发生,此时启动故障诊断模块能够达到对系统故障进行判断甚至预测的目的。进行故障诊断方法开发时,在考虑上文对于诊断方法综述的基础上,还应考虑不同应用场景对于故障诊断方法性能的不同要求:对于固定式燃料电池发电系统,其对故障诊断方法的要求更侧重于是否拥有足够高的诊断精度及对于多重故障的诊断能力;而对于交通运输等动态应用场景,更侧重于诊断模块是否拥有足够强的鲁棒性以及足够快的诊断速度。虽然现阶段的 PEMFC 系统故障诊断方法已经初步具备了这些能力,且得到了一定程度的实际应用,然而这些方法所具备的诊断功能往往并不完善,距离实现一套能够在电堆全生命周期内适应不同工况且功能全面的故障诊断策略仍有很大的发展空间,未来应着重考虑在系统老化、运行工况变

化等工作点漂移情况下的故障诊断,同时能够对一些形成时间尺度较长的故障实现预测和诊断,此外在工程应用中对燃料电池功率需求增长的背景下,对于多电堆系统的故障诊断也是一个值得探索的方向。

在诊断环节完成后对于故障的安全风险评估也尤为重要,合理的安全风险评估体系对未来的任务执行以及维修保养具有指导意义。目前国家和地方政府已经出台或正在出台了一些相关标准(如《GB/T 24549-2020》《DB37/T 4099-2020》等),行业内也有相关风险评估的实例^[52],但仍存在应用背景带来的局限性,未来应在现有安全风险评估体系之上,根据不同应用场景下不同故障发生频次及危害的归纳统计数据,开展更为细化和智能化的安全风险评估体系制定研究。

4.3 故障缓解措施的研究

对于故障缓解的研究贯穿了整个燃料电池的生命周期,包括从电堆及设备的本体设计与加工,到运行过程中的健康管理。出厂之前的设计和加工工作可以对故障有效规避,例如电堆流道的仿生设计加快了水热的排出速度、空压机的级联设计能够为反应提供稳定充足的氧气等,但是仅靠于此并不能解决问题的根本,因此需要在实际运行过程中配备容错控制对故障进行缓解。故障诊断为容错控制提供决策依据,容错控制能够根据诊断结果调整控制律来保证系统稳定运行,因此故障诊断模块性能优良是前提,而得到准确诊断结果后能够有效应对因传感器、执行器异常所带来的控制律重构问题则是解决该技术发展瓶颈的关键。未来若能够将容错控制以及系统设备本体优化有机融合,有望提升系统规避缓解故障的能力,因此以容错控制技术也是潜在的研究方向。

5 结论

本文综述了质子交换膜燃料电池的故障机理及诊断方法,对诊断原理、性能及优缺点进行了深入的分析与评价,并对燃料电池故障在线诊断技术的研究现状进行总结。考虑燃料电池耐久性差及可靠性不足等问题,燃料电池的故障机理研究逐渐明晰,故障诊断方法日益成熟,在线故障诊断技术已经取得阶段性的成果,并得到实际应用。然而故障机理、诊断模块评估策略和故障后缓解策略仍需进一步研究,以确保 PEMFC 能可靠稳定的长期运行。

参考文献

- [1] WANG Yun, CHEN K S, MISHLER J, et al. A review of polymer electrolyte membrane fuel cells: technology, applications, and needs on fundamental research [J]. *Applied Energy*, 2011, 88(4): 981-1007.
- [2] SHARAF O Z, ORHAN M F. An overview of fuel cell technology: fundamentals and applications[J]. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 2014, 32: 810-853.
- [3] HU Zunyan, XU Liangfei, LI Jianqiu, et al. A novel diagnostic methodology for fuel cell stack health: Performance, consistency and uniformity[J]. *Energy Conversion and Management*, 2019, 185: 611-621.
- [4] HISSEL D, PERA M C. Diagnostic & health management of fuel cell systems: issues and solutions[J]. *Annual Reviews in Control*, 2016, 42: 201-211.
- [5] ZHENG Z, PETRONE R, PÉRA M C, et al. A review on non-model based diagnosis methodologies for PEM fuel cell stacks and systems[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2013, 38(21): 8914-8926.
- [6] 邹强, 田颖, 李红松, 等. 基于支持向量机的燃料电池发动机氢气泄漏检测方法[J]. *北京交通大学学报*, 2020, 44(1): 84-90.
ZOU Qiang, TIAN Ying, LI Hongsong, et al. Hydrogen leakage detection method for fuel cell engine based on support vector machine[J]. *Journal of Beijing Jiaotong University*, 2020, 44(1): 84-90(in Chinese).
- [7] 全睿, 全书海, 谢长君, 等. 燃料电池发动机故障诊断专家系统设计与研究[J]. *武汉理工大学学报: 交通科学与工程版*, 2011, 35(2): 280-284.
QUAN Rui, QUAN Shuhai, XIE Changjun, et al. Fault diagnosis expert system for fuel cell engine[J]. *Journal of Wuhan University of Technology: Transportation Science & Engineering*, 2011, 35(2): 280-284(in Chinese).
- [8] LIU Jiawei, LI Qi, CHEN Weirong, et al. A discrete hidden Markov model fault diagnosis strategy based on K-means clustering dedicated to PEM fuel cell systems of tramways[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018, 43(27): 12428-12441.
- [9] BENMOUNA A, BECHERIF M, DEPERNET D, et al. Fault diagnosis methods for proton exchange membrane fuel cell system[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(2): 1534-1543.
- [10] PEI Pucheng, LI Yuehua, XU Huachi, et al. A review on water fault diagnosis of PEMFC associated with the pressure drop[J]. *Applied Energy*, 2016, 173: 366-385.
- [11] PETRONE R, ZHENG Z, HISSEL D, et al. A review on model-based diagnosis methodologies for PEMFCs [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2013, 38(17): 7077-7091.

- [12] LIN Rongheng, XI Xuenan, WANG Peinan, et al. Review on hydrogen fuel cell condition monitoring and prediction methods[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2019, 44(11): 5488-5498.
- [13] 陈维荣, 刘嘉蔚, 李奇, 等. 质子交换膜燃料电池故障诊断方法综述及展望[J]. *中国电机工程学报*, 2017, 37(16): 4712-4721.
CHEN Weirong, LIU Jiawei, LI Qi, et al. Review and prospect of fault diagnosis methods for proton exchange membrane fuel cell[J]. *Proceedings of the CSEE*, 2017, 37(16): 4712-4721(in Chinese).
- [14] 赵冬冬, 赵国胜, 夏磊, 等. 无人机用燃料电池阴极供气系统建模与控制[J]. *航空学报*, 2021, 42(7): 496-512, doi: 10.7527/S1000-6893.2020.24659.
ZHAO Dongdong, ZHAO Guosheng, XIA Lei, et al. Modeling and control of fuel cell cathode gas supply system for UAV[J]. *Acta Aeronautica et Astronautica Sinica*, 2021, 42(7): 496-512, doi: 10.7527/S1000-6893.2020.24659(in Chinese).
- [15] 刘文明. 阴极开放式空冷质子交换膜燃料电池结构与性能的研究[D]. 南京: 南京大学, 2017.
LIU Wenming. Study on the structure and performance of open-cathode air-cooling proton exchange membrane fuel cells[D]. Nanjing: Nanjing University, 2017(in Chinese).
- [16] CHEN Huicui, ZHAO Xin, ZHANG Tong, et al. The reactant starvation of the proton exchange membrane fuel cells for vehicular applications: a review[J]. *Energy Conversion and Management*, 2019, 182: 282-298.
- [17] KO D, KANG Y, YANG J, et al. Polarization characteristics and property distributions of a proton exchange membrane fuel cell under cathode starvation conditions[J]. *International Journal of Energy Research*, 2010, 34(10): 865-877.
- [18] 左立庆. 空气压缩机防喘振阀关键技术研究[D]. 哈尔滨: 哈尔滨工程大学, 2018.
ZUO Liqing. Research on key technology of anti-surge valve of air compressor[D]. Harbin: Harbin Engineering University, 2018(in Chinese).
- [19] KANG J, JUNG D W, PARK S, et al. Accelerated test analysis of reversal potential caused by fuel starvation during PEMFCs operation[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2010, 35(8): 3727-3735.
- [20] TANIGUCHI A, AKITA T, YASUDA K, et al. Analysis of electrocatalyst degradation in PEMFC caused by cell reversal during fuel starvation[J]. *Journal of Power Sources*, 2004, 130(1-2): 42-49.
- [21] STRAHL S, HUSAR A, RIERA J. Experimental study of hydrogen purge effects on performance and efficiency of an open-cathode proton exchange membrane fuel cell system[J]. *Journal of Power Sources*, 2014, 248: 474-482.
- [22] SANCHEZ D G, GARCIA-YBARRA P L. PEMFC operation failure under severe dehydration [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2012, 37(8): 7279-7288.
- [23] 彭跃进, 张国瑞, 王勇, 等. 阴、阳极加湿对质子交换膜燃料电池性能影响的差异性[J]. *电工技术学报*, 2017, 32(4): 196-203.
PENG Yuejin, ZHANG Guorui, WANG Yong, et al. Differences on the influences of humidity of cathode and anode on the performance of proton exchange membrane fuel cell[J]. *Transactions of China Electrotechnical Society*, 2017, 32(4): 196-203(in Chinese).
- [24] PAVLIŠIČ A, JOVANOVIČ P, ŠELIH V S, et al. Platinum dissolution and redeposition from Pt/C fuel cell electrocatalyst at potential cycling[J]. *Journal of the Electrochemical Society*, 2018, 165(6): F3161-F3165.
- [25] CADET C, JEMEŠ S, DRUART F, et al. Diagnostic tools for PEMFCs: from conception to implementation [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2014, 39(20): 10613-10626.
- [26] 马睿, 皇甫宜耿, 赵冬冬, 等. 多物理域质子交换膜燃料电池建模仿真及实验测试[J]. *电源学报*, 2019, 17(2): 3-11.
MA Rui, HUANGFU Yigeng, ZHAO Dongdong, et al. Multi-physical modeling simulation and experimental test of proton exchange membrane fuel cell[J]. *Journal of Power Supply*, 2019, 17(2): 3-11(in Chinese).
- [27] MA Rui, LIU Chen, ZHENG Zhixue, et al. CPU-FPGA based real-time simulation of fuel cell electric vehicle [J]. *Energy Conversion and Management*, 2018, 174: 983-997.
- [28] ESMALI Q, NIMVARI M E, JOUYBARI N F, et al. Model based water management diagnosis in polymer electrolyte membrane fuel cell[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(31): 15618-15629.
- [29] POLVERINO P, FRISK E, JUNG D, et al. Model-based diagnosis through structural analysis and causal computation for automotive polymer electrolyte membrane fuel cell systems[J]. *Journal of Power Sources*, 2017, 357: 26-40.
- [30] HERNANDEZ A, HISSEL D, OUTBIB R. Modeling and fault diagnosis of a polymer electrolyte fuel cell using electrical equivalent analysis[J]. *IEEE Transactions on Energy Conversion*, 2010, 25(1): 148-160.

- [31] BECHERIF M, HISSEL D, GAAGAT S, et al. Three order state space modeling of proton exchange membrane fuel cell with energy function definition[J]. *Journal of Power Sources*, 2010, 195(19): 6645-6651.
- [32] NIYA S M R, HOORFAR M. Process modeling of electrodes in proton exchange membrane fuel cells [J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2015, 747: 112-122.
- [33] NIYA S M R, PHILLIPS R K, HOORFAR M. Process modeling of the impedance characteristics of proton exchange membrane fuel cells[J]. *Electrochimica Acta*, 2016, 191: 594-605.
- [34] NIYA S M R, PHILLIPS R K, HOORFAR M. Study of anode and cathode starvation effects on the impedance characteristics of proton exchange membrane fuel cells[J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2016, 775: 273-279.
- [35] 袁浩, 戴海峰, 杜润本, 等. 质子交换膜燃料电池电化学阻抗谱弛豫时间分布研究[J]. *机械工程学报*, 2020, 56(22): 120-130.
- YUAN Hao, DAI Haifeng, DU Runben, et al. Distribution of relaxation times analysis of proton exchange membrane fuel cell electrochemical impedance spectra[J]. *Journal of Mechanical Engineering*, 2020, 56(22): 120-130(in Chinese).
- [36] LIU Jianxing, LUO Wensheng, YANG Xiaozhan, et al. Robust model-based fault diagnosis for PEM fuel cell air-feed system [J]. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 2016, 63(5): 3261-3270.
- [37] BOUGATEF Z, ABDELKRIM N, AITOUICHE A, et al. Fault detection of a PEMFC system based on delayed LPV observer[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(19): 11233-11241.
- [38] BUCHHOLZ M, ESWEIN M, KREBS V. Modelling PEM fuel cell stacks for FDI using linear subspace identification[C]//*IEEE International Conference on Control Applications*. San Antonio: IEEE, 2008: 341-346.
- [39] LI Zhongliang, OUTBIB R, HISSEL D, et al. Diagnosis of PEMFC by using data-driven parity space strategy[C]//*2014 European Control Conference(ECC)*. Strasbourg: IEEE, 2014: 1268-1273.
- [40] OGAJI S O T, SINGH R, PILIDIS P, et al. Modelling fuel cell performance using artificial intelligence [J]. *Journal of Power Sources*, 2006, 154(1): 192-197.
- [41] YOUSFI STEINER N, HISSEL D, MOÇOTÉGUY P, et al. Diagnosis of polymer electrolyte fuel cells failure modes(flooding & drying out) by neural networks modeling[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2011, 36(4): 3067-3075.
- [42] LARIBI S, MAMMAR K, SAHLI Y, et al. Analysis and diagnosis of PEM fuel cell failure modes(flooding & drying) across the physical parameters of electrochemical impedance model: Using neural networks method [J]. *Sustainable Energy Technologies and Assessments*, 2019, 34: 35-42.
- [43] 郭家兴, 朱新坚, 曹广益. 质子交换膜燃料电池故障诊断[J]. *电源技术*, 2008, 32(8): 528-531.
- GUO Jiaying, ZHU Xinjian, CAO Guangyi. Fault diagnosis of PEMFC[J]. *Chinese Journal of Power Sources*, 2008, 32(8): 528-531(in Chinese).
- [44] 全睿, 全书海, 黄亮, 等. 基于模糊故障树的燃料电池发动机氢安全[J]. *上海交通大学学报*, 2010, 44(7): 951-956.
- QUAN Rui, QUAN Shuhai, HUANG Liang, et al. Study on hydrogen safety of fuel cell engine based on fuzzy fault tree[J]. *Journal of Shanghai Jiaotong University*, 2010, 44(7): 951-956(in Chinese).
- [45] SUN Tao, YAN Sijia, CAO Guangyi, et al. Modelling and control PEMFC using fuzzy neural networks [J]. *Journal of Zhejiang University-Science A*, 2005, 6(10): 1084-1089.
- [46] SILVA R E, GOURIVEAU R, JEMEÏ S, et al. Proton exchange membrane fuel cell degradation prediction based on adaptive neuro-fuzzy inference systems [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2014, 39(21): 11128-11144.
- [47] KHEIRANDISH A, SHAFIABADY N, DAHARI M, et al. Modeling of commercial proton exchange membrane fuel cell using support vector machine[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2016, 41(26): 11351-11358.
- [48] PENG Xiaobin, WU Weiqiang, ZHANG Yakun, et al. Determination of operating parameters for PEM fuel cell using support vector machines approach[J]. *Journal of Energy Storage*, 2017, 13: 409-417.
- [49] WANG Bowen, ZHANG Guobin, WANG Huizhi, et al. Multi-physics-resolved digital twin of proton exchange membrane fuel cells with a data-driven surrogate model[J]. *Energy and AI*, 2020, 1: 100004.
- [50] O'NEIL C, SCHUTT R. Doing data science: straight talk from the frontline[M]. Sevastopol: O'Reilly Media, 2013.
- [51] 余嘉熹, 李奇, 陈维荣, 等. 基于随机森林算法的大功率质子交换膜燃料电池系统故障分类方法[J]. *中国电机工程学报*, 2020, 40(17): 5591-5598.
- YU Jiayi, LI Qi, CHEN Weirong, et al. A fault

- classification method of high-power proton exchange membrane fuel cell systems based on the random forest [J]. *Proceedings of the CSEE*, 2020, 40(17): 5591-5598(in Chinese).
- [52] 刘嘉蔚, 李奇, 陈维荣, 等. 基于多分类相关向量机和模糊 C 均值聚类的有轨电车用燃料电池系统故障诊断方法[J]. *中国电机工程学报*, 2018, 38(20): 6045-6052. LIU Jiawei, LI Qi, CHEN Weirong, et al. A fault diagnosis method of fuel cell systems for tramways based on the multi-class relevance vector machine and fuzzy C means clustering[J]. *Proceedings of the CSEE*, 2018, 38(20): 6045-6052(in Chinese).
- [53] ZHANG Xuexia, ZHOU Jingzhe, CHEN Weirong. Data-driven fault diagnosis for PEMFC systems of hybrid tram based on deep learning[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(24): 13483-13495.
- [54] LI Zhongliang, CADET C, OUTBIB R, et al. Diagnosis for PEMFC based on magnetic measurements and data-driven approach[J]. *IEEE Transactions on Energy Conversion*, 2019, 34(2): 964-972.
- [55] CHEN Jixin, ZHOU Biao. Diagnosis of PEM fuel cell stack dynamic behaviors[J]. *Journal of Power Sources*, 2008, 177(1): 83-95.
- [56] MA Tiancai, LIN Weikang, YANG Yanbo, et al. Water content diagnosis for proton exchange membrane fuel cell based on wavelet transformation[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(39): 20339-20350.
- [57] KIM J, TAK Y. Implementation of discrete wavelet transform-based discrimination and state-of-health diagnosis for a polymer electrolyte membrane fuel cell[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2014, 39(20): 10664-10682.
- [58] IBRAHIM M, ANTONI U, STEINER N Y, et al. Signal-based diagnostics by wavelet transform for proton exchange membrane fuel cell[J]. *Energy Procedia*, 2015, 74: 1508-1516.
- [59] DAMOUR C, BENNE M, GRONDIN-PEREZ B, et al. Polymer electrolyte membrane fuel cell fault diagnosis based on empirical mode decomposition[J]. *Journal of Power Sources*, 2015, 299: 596-603.
- [60] LI Zhongliang, OUTBIB R, GIURGEA S, et al. Fault diagnosis for PEMFC systems in consideration of dynamic behaviors and spatial inhomogeneity[J]. *IEEE Transactions on Energy Conversion*, 2019, 34(1): 3-11.
- [61] ZHAO Xingwang, XU Liangfei, LI Jianqiu, et al. Faults diagnosis for PEM fuel cell system based on multi-sensor signals and principle component analysis method [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2017, 42(29): 18524-18531.
- [62] 刘嘉蔚, 李奇, 陈维荣, 等. 基于在线序列超限学习机和主成分分析的蒸汽冷却型燃料电池系统快速故障诊断方法[J]. *电工技术学报*, 2019, 34(18): 3949-3960. LIU Jiawei, LI Qi, CHEN Weirong, et al. Fast fault diagnosis method of evaporatively cooled fuel cell system based on online sequential extreme learning machine and principal component analysis[J]. *Transactions of China Electrotechnical Society*, 2019, 34(18): 3949-3960(in Chinese).
- [63] ZHOU Shangwei, DHUPIA J S. RETRACTED: online adaptive water management fault diagnosis of PEMFC based on orthogonal linear discriminant analysis and relevance vector machine[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(11): 7005-7014.
- [64] LIU Jiawei, LI Qi, YANG Hanqing, et al. Sequence fault diagnosis for PEMFC water management subsystem using deep learning with t-SNE[J]. *IEEE Access*, 2019, 7: 92009-92019.
- [65] SHAO Meng, ZHU Xinjian, CAO Hongfei, et al. An artificial neural network ensemble method for fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell system[J]. *Energy*, 2014, 67: 268-275.
- [66] LIU Jiawei, LI Qi, CHEN Weirong, et al. A fast fault diagnosis method of the PEMFC system based on extreme learning machine and dempster-Shafer evidence theory [J]. *IEEE Transactions on Transportation Electrification*, 2019, 5(1): 271-284.
- [67] 王森, 雷卫军, 刘健, 等. 基于 LSTM-RNN 的质子交换膜燃料电池故障检测方法[J]. *电子技术与软件工程*, 2019(4): 74-78. WANG Sen, LEI Weijun, LIU Jian, et al. A fault detection method of proton exchange membrane fuel cell based on LSTM-RNN[J]. *Electronic Technology & Software Engineering*, 2019(4): 74-78(in Chinese).
- [68] LI Zhongliang, OUTBIB R, GIURGEA S, et al. Diagnosis for PEMFC systems: a data-driven approach with the capabilities of online adaptation and novel fault detection[J]. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 2015, 62(8): 5164-5174.
- [69] LIN Rongheng, PEI Zixiang, YE Zezhou, et al. Hydrogen fuel cell diagnostics using random forest and enhanced feature selection[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(17): 10523-10535.
- [70] DANG Hanbin, MA Rui, ZHAO Dongdong, et al. A novel diagnosis method of proton exchange membrane fuel cells

- based on the PCA and XGBoost algorithm[C]//IECON 2020 The 46th Annual Conference of the IEEE Industrial Electronics Society. Singapore: IEEE, 2020: 3951-3956.
- [71] LIU Zhongyong, PEI Mengliu, HE Qingbo, et al. A novel method for polymer electrolyte membrane fuel cell fault diagnosis using 2D data[J]. *Journal of Power Sources*, 2021, 482: 228894.
- [72] KIM J, LEE I, TAK Y, et al. State-of-health diagnosis based on hamming neural network using output voltage pattern recognition for a PEM fuel cell[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2012, 37(5): 4280-4289.
- [73] 周苏, 杨铠, 胡哲. FCM 方法和 SVM 方法在燃料电池故障诊断模式识别中的对比研究[J]. *机电一体化*, 2016, 22(5): 3-7, 21.
ZHOU Su, YANG Kai, HU Zhe. Comparison on methods of pattern recognition in PEMFC faults diagnosis based on FCM and SVM[J]. *Mechatronics*, 2016, 22(5): 3-7, 21(in Chinese).
- [74] LI Zhongliang, OUTBIB R, HISSEL D, et al. Data-driven diagnosis of PEM fuel cell: a comparative study[J]. *Control Engineering Practice*, 2014, 28: 1-12.
- [75] GU Xin, HOU Zhongjun, CAI Jun. Data-based flooding fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell systems using LSTM networks[J]. *Energy and AI*, 2021, 4: 100056.
- [76] XIE Renyou, MA Rui, PU Sicheng, et al. Prognostic for fuel cell based on particle filter and recurrent neural network fusion structure[J]. *Energy and AI*, 2020, 2: 100017.
- [77] 徐奇伟, 黄宏, 张雪锋, 等. 基于改进区域全卷网络的高压引线接头红外图像特征分析的在线故障诊断方法[J]. *电工技术学报*, 2021, 36(7): 1380-1388.
XU Qiwei, HUANG Hong, ZHANG Xuefeng, et al. Online fault diagnosis method for infrared image feature analysis of high-voltage lead connectors based on improved R-FCN[J]. *Transactions of China Electrotechnical Society*, 2021, 36(7): 1380-1388(in Chinese).
- [78] AZIZ F, HAQ A U, AHMAD S, et al. A novel convolutional neural network-based approach for fault classification in photovoltaic arrays[J]. *IEEE Access*, 2020, 8: 41889-41904.
- [79] 刘辉海, 赵星宇, 赵洪山, 等. 基于深度自编码网络模型的风电机组齿轮箱故障检测[J]. *电工技术学报*, 2017, 32(17): 156-163.
LIU Huihai, ZHAO Xingyu, ZHAO Hongshan, et al. Fault detection of wind turbine gearbox based on deep autoencoder network[J]. *Transactions of China Electrotechnical Society*, 2017, 32(17): 156-163(in Chinese).
- [80] ANG Zhepeng, HUANG Qiuan, WANG Yanjie, et al. Recent progress in the use of electrochemical impedance spectroscopy for the measurement, monitoring, diagnosis and optimization of proton exchange membrane fuel cell performance [J]. *Journal of Power Sources*, 2020, 468: 228361.
- [81] REN Peng, PEI Pucheng, LI Yuehua, et al. Diagnosis of water failures in proton exchange membrane fuel cell with zero-phase ohmic resistance and fixed-low-frequency impedance[J]. *Applied Energy*, 2019, 239: 785-792.
- [82] PIVAC I, ŠIMIĆ B, BARBIR F. Experimental diagnostics and modeling of inductive phenomena at low frequencies in impedance spectra of proton exchange membrane fuel cells[J]. *Journal of Power Sources*, 2017, 365: 240-248.
- [83] LU Huaxin, CHEN Jian, YAN Chizhou, et al. On-line fault diagnosis for proton exchange membrane fuel cells based on a fast electrochemical impedance spectroscopy measurement[J]. *Journal of Power Sources*, 2019, 430: 233-243.
- [84] NAZER R A, CATTIN V, GRANJON P, et al. Classical EIS and square pattern signals comparison based on a well-known reference impedance[C]//2013 World Electric Vehicle Symposium and Exhibition(EVS27). Barcelona: IEEE, 2013: 1-7.
- [85] WANG X, MA Y, GAO J, et al. Review on water management methods for proton exchange membrane fuel cells[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2021, 46(22): 12206-12229.
- [86] ZHAN Zhigang, WANG Chen, FU Weiguo, et al. Visualization of water transport in a transparent PEMFC[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2012, 37(1): 1094-1105.
- [87] TURHAN A, HELLER K, BRENIZER J S, et al. Passive control of liquid water storage and distribution in a PEFC through flow-field design[J]. *Journal of Power Sources*, 2008, 180(2): 773-783.
- [88] AKITOMO F, SASABE T, YOSHIDA T, et al. Investigation of effects of high temperature and pressure on a polymer electrolyte fuel cell with polarization analysis and X-ray imaging of liquid water[J]. *Journal of Power Sources*, 2019, 431: 205-209.
- [89] SONG Mancun, PEI Pucheng, ZHA Hongshan, et al. Water management of proton exchange membrane fuel cell based on control of hydrogen pressure drop [J].

- Journal of Power Sources, 2014, 267: 655-663.
- [90] ESKIN M G, YEŞİLYURT S. Anode bleeding experiments to improve the performance and durability of proton exchange membrane fuel cells[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2019, 44(21): 11047-11056.
- [91] NIROUMAND A M, POOYANFAR O, MACAULEY N, et al. In-situ diagnostic tools for hydrogen transfer leak characterization in PEM fuel cell stacks part I: R&D applications[J]. Journal of Power Sources, 2015, 278: 652-659.
- [92] IFREK L, ROSINI S, CAUFFET G, et al. Fault detection for polymer electrolyte membrane fuel cell stack by external magnetic field[J]. Electrochimica Acta, 2019, 313: 141-150.
- [93] PLAIT A, GIURGEA S, HISSEL D, et al. New magnetic field analyzer device dedicated for polymer electrolyte fuel cells noninvasive diagnostic[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2020, 45(27): 14071-14082.
- [94] MOHAMMADI A, DJERDIR A, STEINER N Y, et al. Advanced diagnosis based on temperature and current density distributions in a single PEMFC[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2015, 40(45): 15845-15855.
- [95] ZHENG Zhixue, PÉRA M C, HISSEL D, et al. A double-fuzzy diagnostic methodology dedicated to online fault diagnosis of proton exchange membrane fuel cell stacks[J]. Journal of Power Sources, 2014, 271: 570-581.
- [96] JEPPESEN C, ARAYA S S, SAHLIN S L, et al. Fault detection and isolation of high temperature proton exchange membrane fuel cell stack under the influence of degradation[J]. Journal of Power Sources, 2017, 359: 37-47.
- [97] ZHENG Zhixue, MORANDO S, PERA M C, et al. Brain-inspired computational paradigm dedicated to fault diagnosis of PEM fuel cell stack[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2017, 42(8): 5410-5425.
- [98] 周苏, 胡哲, 文泽军. 基于 K 均值和支持向量机的燃料电池在线自适应故障诊断[J]. 同济大学学报: 自然科学版, 2019, 47(2): 255-260.
- ZHOU Su, HU Zhe, WEN Zejun. A k-means/support vector machine based self-adaptive online fault diagnosis method for fuel cell systems[J]. Journal of Tongji University: Natural Science, 2019, 47(2): 255-260(in Chinese).



马睿

在线出版日期: 2022-10-09。

收稿日期: 2022-07-25。

作者简介:

马睿(1990), 男, 副教授, 博士生导师, IEEE 高级会员, 主要从事质子交换膜燃料电池系统, 新能源发电系统, 综合能源系统能量管控等方面的研究工作, rui.ma@nwpu.edu.cn。

党翰斌(1996), 男, 博士研究生, 主要从事质子交换膜燃料电池故障诊断及容错控制研究, hanbin.dang@mail.nwpu.edu.cn。

(编辑 张文鑫)